


esp@cenet document view

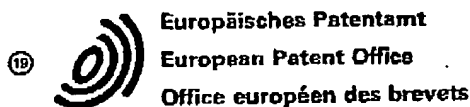
BEST AVAILABLE COPY**Process for the conditioning of organic pigments.**

Patent number: EP0038548
Publication date: 1981-10-28
Inventor: LERNER LAWRENCE ROBERT; SHANNON CHARLES
EHLERS; SANTIMAURO FRANCIS
Applicant: MOBAY CHEMICAL CORP (US)
Classification:
- **international:** C09B57/04; C09B67/10; C09B57/00; C09B67/00;
(IPC1-7): C09B57/04; C09B67/10
- **europaean:** C09B57/04; C09B67/00B5
Application number: EP19810102981 19810417
Priority number(s): US19800141838 19800421; US19800143571 19800425

Also published as: EP0038548 (A3)**Cited documents:** FR2355886
 FR2414086
 FR2107084
 DE1012406**Report a data error here****Abstract of EP0038548**

The process comprises heating a crude pigment of the formula where X and Y are each a radical of barbituric acid or of a barbituric acid derivative and A is the complement to a benzene, 1,2-naphthalene, 2,3-naphthalene, dithiane, pyridine or pyrazine ring, which rings can also be substituted, in an aqueous suspension which is essentially free of organic solvents essentially in the absence of shearing forces to a temperature of from about 110 DEG to about 175 DEG C, in the presence or absence of a surface-active compound, and then isolating the pigment.

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide



(11) Veröffentlichungsnummer:

0 038 548
A2**EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

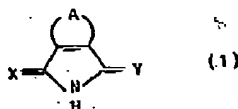
(21) Anmeldenummer: 81102981.8

(61) Int. Cl.³: C 09 B 57/04
C 09 B 67/10

(22) Anmeldetag: 17.04.81

(30) Priorität: 21.04.80 US 141838
25.04.80 US 143571(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:
28.10.81 Patentblatt 81/43(64) Benannte Vertragsstaaten:
CH DE FR GB LI(71) Anmelder: Mobay Chemical Corporation
Penn Lincoln Parkway West
Pittsburgh, Pennsylvania 15205(US)(72) Erfinder: Lerner, Lawrence Robert
176 Grove Terrace
Livingston New Jersey 07039(US)(72) Erfinder: Shannon, Charles Ehlers
88 Elbert Court
Ramsey New Jersey 07446(US)(72) Erfinder: Santimaro, Francis
731 Birchwood Drive
Wyckoff New Jersey 07481(US)(74) Vertreter: Gremm, Joachim, Dr. et al.
Bayer AG c/o Zentralbereich Patente, Marken und
Lizenzen Bayerwerk
D-5090 Leverkusen(DE)

(64) Verfahren zur Konditionierung von organischen Pigmenten.

(57) Verfahren zur Konditionierung organischer Pigmente,
dadurch gekennzeichnet, daß man ein Rohpigment der For-
mel

EP 0 038 548 A2 in der
X, Y Rest einer Barbitursäure oder eines Barbitursäurederi-
vats und
A die restlichen Glieder eines Benzol-, 1,2- Naphthalin-,
2,3-Naphthalin-, Dithien-, Pyridin- oder Pyrazin-Ringes
bezeichnen, wobei die genannten Ringe substituiert
sein können,

in wäßriger Aufschlämmung, die im wesentlichen frei von
organischen Lösungsmitteln ist, im wesentlichen in Abwe-
senheit von Scherkräften auf eine Temperatur von etwa 110°C
bis etwa 175°C, gegebenenfalls in Anwesenheit einer oberfläch-
aktiven Verbindung, erwärmt und man danach das Pig-
ment isoliert.

Croydon Printing Company Ltd.

0038548

- 1 -

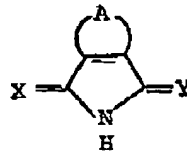
Mobay Chemical Corporation
Dyes and Pigments Division

Hawthorne, New Jersey 07506
USA

Verfahren zur Konditionierung von organischen Pigmenten

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Konditionierung organischer Pigmente zur Erzielung verbesserter technologischer und färberischer Eigenschaften.

Das neue Verfahren ist dadurch gekennzeichnet, daß man
5 ein Rohpigment der Formel



(I)

in der

X, Y Reste einer Barbitursäure oder eines Barbitursäurederivats und

- 10 A die restlichen Glieder eines Benzol-, 1,2-Naphthalin-, 2,3-Naphthalin-, Dithian-, Pyridin- oder Pyrazin-Ringes, wobei die genannten Ringe substituiert sein können,

bezeichnen in wäßriger Aufschlämmung, die im wesentlichen
15 lichen frei von organischen Lösungsmitteln ist,

HC 39 -Ausland

0038548

- 2 -

im wesentlichen in Abwesenheit von Scherkräften auf eine Temperatur von etwa 110°C bis etwa 175°C, gegebenenfalls in Gegenwart einer oberflächenaktiven Verbindung, erwärmt und man danach das Pigment

5 isoliert.

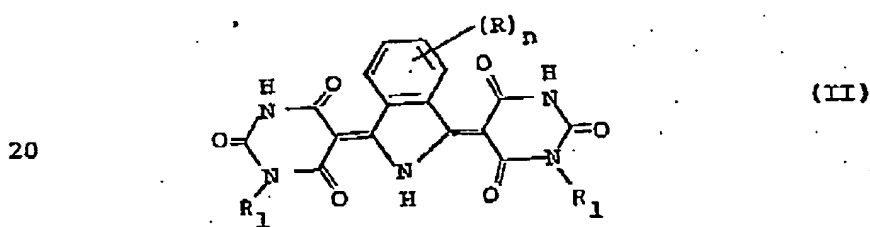
Die durch A geschlossenen Ringe können z.B. durch Halogen, C₁-C₁₀-Alkyl, Phenyl, Carbamoyl, (C₁-C₁₀-Alkyl)-carbonylamino, Benzoylamino, C₁-C₄-Alkoxy und/oder Phenoxy substituiert sein; bevorzugt Substituenten

10 sind Halogen, Phenyl und C₁-C₄-Alkoxy.

Die Barbitursäurederivate X und/oder Y sind z.B. N-(C₁-C₁₀-Alkyl)- oder N,N'-(Di-C₁-C₁₀-Alkyl)-barbitursäure, vorzugsweise N-(C₁-C₄-Alkyl)- und N,N'-(Di-C₁-C₄-Alkyl)-barbitursäure wie N-Methylbarbitursäure, N,N'-Di-

15 methylbarbitursäure, N-Ethylbarbitursäure, N,N'-Diethylbarbitursäure oder N,N'-Diphenylbarbitursäure, 2-Thio-barbitursäure und 1-Iminobarbitursäure.

Vorzugsweise werden nach dem erfindungsgemäßen Verfahren Rohpigmente der Formel



in der

EC 39

0038548

- 3 -

R für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl, Phenyl, Brom, Chlor (C₁-C₄-Alkyl)-carbonylamino, Benzoylamino, Phenoxy oder C₁-C₄-Alkoxy steht, und

n 0, 1 oder 2 ist und

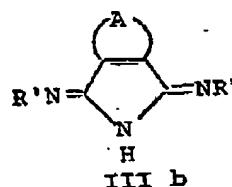
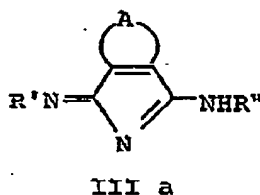
R₁ Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl oder Phenyl bezeichnet, 5 kondensiert.

Vorzugsweise setzt man Rohpigmente mit einer mittleren Größe der Primärteilchen unterhalb 0,8 µm oder von vorzugsweise 0,7 µm oder darunter wie 0,1 µm ein.

Die Herstellung der Pigmente, die als Ausgangsmaterial 10 beim erfindungsgemäßen Verfahren dienen, d.h. der Rohpigmente der Formel (I), ist bekannt, z.B. aus DE-AS 1 012 406, DE-OS 2 041 999 und US-PS 4 166 179.

In diesem Zusammenhang sei insbesondere auf DE-AS 1 012 406, Beispiel 5, DE-OS 2 041 999, Beispiele 1-7 15 und US-PS 4 166 179, Beispiele 1-20 verwiesen.

Vorzugsweise werden solche Rohpigmente der Formel (I) eingesetzt, die durch Kondensation einer Verbindung der Formeln



HC 39

0038548

- 4 -

in denen

A die zu Formel (I) angegebene Bedeutung hat und

R', R'' Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl oder Phenyl bezeichnen,

- 5 mit Barbitursäure oder einem Barbitursäurederivat in Wasser in Gegenwart einer Carbon-, Sulfon- oder Mineralsäure bei einem pH-Wert von etwa 1-6 und bei 20°C bis 150°C erhalten worden sind.

- 10 Die zur Erzielung der wäßrigen Aufschlämmung dem Pigment zugesetzte Wassermenge ist abhängig von der gewünschten Zähigkeit. Im allgemeinen verwendet man pro Gewichtsteil Pigment oder Pigmentpreßkuchen etwa 10 bis etwa 30 Gewichtsteile Wasser.

- 15 Je nach den gewünschten Pigmenteigenschaften kann die Erwärmungszeit in weiten Grenzen variiert werden. Vorzugsweise erwärmt man etwa 1 h bis etwa 16 h, besonders bevorzugt etwa 1 h bis etwa 8 h. Die Behandlungstemperatur beträgt bevorzugt etwa 120°C bis etwa 150°C.

- 20 Als oberflächenaktive Verbindungen setzt man in das erfindungsgemäße Verfahren übliche nicht-ionogene, kationische und anionische Verbindungen ein wie Alkali- und Erdalkalisalze von Alkylbenzolsulfonsäuren, Alkylphenolsulfonsäuren, Alkyl-naphthalinsulfonsäuren und partiell sulfonierten Polystyrole, Alkalisalze wasserlöslicher Kondensationsprodukte aus Naphthalinmonosulfonsäuren

HC 39

0038548

- 5 -

- oder deren Alkylderivaten und Formaldehyd, Alkalisalze wasserlöslicher Kondensationsprodukte aus Phenolsulfonsäuren, Formaldehyd und Harnstoff, Ligninsulfonate, Addukte von Ethylenoxid und/oder Propylenoxid an Alkanole, Alkandiole, Phenole, Carbonsäuren, Amine und Carbonsäureamide, weiterhin mit Wasser quellbare und wasserlösliche Polymere, z.B. Vinylpyrrolidonpolymere und Copolymere wasserlöslicher Monomere z.B. N-Vinylpyrrolidon, Acrylamid oder Acrylsäure mit wasserunlöslichen Monomeren wie Acrylnitril, Methylacrylat, Vinylacetat, Vinylchlorid oder Styrol und Polyvinylalkohol. Auch Gemische verschiedener oberflächenaktiver Substanzen sind einsetzbar.

- Besonders bevorzugte oberflächenaktive Verbindungen sind die Alkalisalze von Alkylbenzolsulfonsäuren, Alkylphenolsulfonsäuren und Alkylnaphthalinsulfonsäuren, die Alkalisalze von Kondensationsprodukten aus Phenolsulfonsäuren, Formaldehyd und Harnstoff sowie Addukte von Propylenoxid und/oder Ethylenoxid mit Ethylenglykol, 1,3-Propandiol und Ethylendiamin.

- Die eingesetzte Menge der oberflächenaktiven Verbindung kann innerhalb weiter Grenzen schwanken. Vorzugsweise verwendet man 1-150 Gew.-%, besonders bevorzugt 5-100 Gew.-% bezogen auf das Pigmentgewicht.

- Die in das erfindungsgemäße Verfahren eingesetzte wässrige Pigmentaufschlämmung ist im wesentlichen frei von organischen Lösungsmitteln, insbesondere frei von Ethylenglykol; sie kann jedoch wechselnde anorganische oder or-

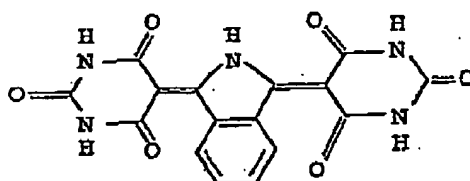
HC 39

0038548

- 6 -

ganischer Säuren wie aliphatische Carbonsäuren, insbesondere Essigsäure oder Ameisensäure, aromatische Carbonsäuren oder aliphatischen Sulfonsäuren, die z.B. bei der Herstellung des Rohpigments als Kondensationshilfsmittel eingesetzt werden, enthalten.

Die Konditionierung des Pigments der Formel



(IV)

wird vorzugsweise in folgender Weise ausgeführt.

Ein wäBriger Preßkuchen (1 Gewichtsteil trockenes Pigment), der z.B. durch Kondensation von 1-Amino-3-imino-isoindolenin und Barbitursäure im Molverhältnis 1:2 in Wasser in Gegenwart von Essigsäure gemäß den Verfahren der DE-AS 1 012 406 oder in Gegenwart von Eisessig nach dem Verfahren der DE-AS 2 041 999 und Wasserwäsche des Reaktionsproduktes erhalten wird, wird mit 10 bis 30 Gewichtsteilen Wasser vermengt. Das Gemisch wird vorzugsweise unter Rühren im Autoklaven 1-16 h auf 120°C bis 150°C erhitzt. Die Suspension wird in üblicher Weise z.B. durch Abkühlen, Filtrieren, Wasserwäsche und Trocknung bei erhöhter Temperatur aufgearbeitet.

HC 39

0038548

- 7 -

Das erfindungsgemäße Konditionierungsverfahren ergibt
Pigmente mit weichem Korn, hoher Deckkraft und guten
Echtheitseigenschaften, wie Wasser-, Licht- und Lösungs-
mittelechtheit. Die Pigmente sind temperaturbeständig
5 und in Lacken, Anstrichfarben und Kunststoffen leicht
dispergierbar.

Die folgenden Beispiele veranschaulichen die Erfindung.

HC 39

0038541

- 8 -

Beispiel 1

Ein wäßriger Preßkuchen (36,7 Gew.-Teile Pigmenttrocken-
gewicht) des Pigments hergestellt gemäß DE-AS 1 012 406
wird mit kaltem Wasser auf insgesamt 600 Gew.-Teile ver-
dünn. Das Gemisch wird im Autoklaven auf 145°C erwärmt
5 und bei 140 bis 145°C 2 Stunden gehalten. Die entstehende
Suspension wird auf 90°C abgekühlt, filtriert, der
Filterrückstand mit kaltem Wasser gewaschen und bei
80°C getrocknet. Das erhaltene Produkt (13,6 Gew.-Teile)
10 ist ein rötlich-gelbes Pigment von weicher Textur.

Beispiel 2

Ein wäßriger Preßkuchen der 36,7 Gew.-Teile Pigment
enthält und nach der US-PS 4 166 179, Beispiel 1 herge-
stellt wurde, wird mit kaltem Wasser auf insgesamt
15 600 Gew.-Teile verdünnt. Das Gemisch wird in einem
Autoklaven auf 135 bis 140°C 5 Stunden unter Rühren
erwärmt. Die entstehende Suspension wird auf 90°C
abgekühlt, filtriert und der Rückstand mit kaltem Wasser
gewaschen und bei 80°C getrocknet. Das Produkt (33 Gew.-
20 Teile) ist hervorragend geeignet für Automobillacke
und zur Pigmentierung von Kunststoffen. Es handelt sich
um ein rötlich-gelbes Pigment mit hervorragender Licht-
echtheit und Beständigkeit gegenüber organischen Lösungs-
mitteln.

25 Beispiel 3

Die Arbeitsweise ist die gleiche wie in Beispiel 2, nur

HC 39

- 9 -

0038548

daß man das Erwärmen 5 Stunden bei 125°C vornimmt.

Beispiel 4

Ein wäßriger Preßkuchen des Pigments, das gemäß der
US-PS 4 166 179, Beispiel 1 hergestellt wurde und 36,7
5 Gew.-% trockenes Pigment enthält, wird mit kaltem Wasser
zu insgesamt 600 Gew.-Teile aufgeschwemmt. Das Gemisch
wird 3 Stunden auf 140°C erhitzt. Die entstandene Sus-
pension wird auf 90°C abgekühlt, filtriert, der Rück-
stand mit kaltem Wasser gewaschen und bei 80°C getrocknet.
10 Man erhält 35,9 Gew.-Teile eines rötlich-gelben Pigments,
das brillante Färbungen ergibt.

Beispiel 5

Ein wäßriger Preßkuchen, der 36,7 Gew.-Teile des Pigments
gemäß US-PS 4 166 179, Beispiel 1 enthält, wird mit
15 Wasser auf insgesamt 525 Gew.-Teile verdünnt. Das Ge-
misch wird auf 145°C erhitzt und bei einer Temperatur
von 145°C \pm 2°C 16 Stunden lang gehalten. Die entstan-
dene Suspension wird abgekühlt, filtriert und der
Rückstand mit kaltem Wasser gewaschen. Nach dem Trock-
20 nen bei 60°C erhält man 26,2 Gew.-Teile eines rötlich-
gelben Pigments, das ausgezeichnete Deckkraft und her-
vorragende Lichtlösungsmittel- und Hochtemperaturrecht-
heiten aufweist.

Arbeitet man nach dem Verfahren der Beispiele 1 oder 2,
25 setzt jedoch die nach der DE-OS 2 041 999 Beispiele 1
bis 7 oder nach der US-PS 4 166 179, Beispiel 2 bis 20

HC 39

0038548

- 10 -

erhaltenen Rohpigmente ein, so erhält man ebenfalls
konditionierte Pigmente mit hervorragenden Eigenschaften.

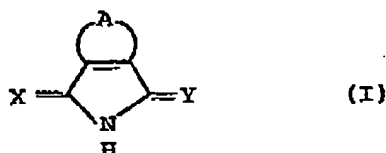
HC 39

0038548

- 11 -

Patentansprüche

1. Verfahren zur Konditionierung organischer Pigmente, dadurch gekennzeichnet, daß man ein Rohpigment der Formel



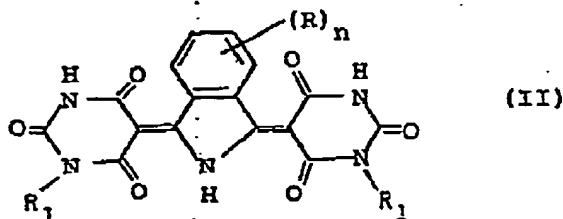
in der

X, Y Reste einer Barbitursäure oder eines Barbitursäurederivats und

10 A die restlichen Glieder eines Benzol-, 1,2-Naphthalin-, 2,3-Naphthalin-, Dithian-, Pyridin- oder Pyrazin-Ringes bezeichnen, wobei die genannten Ringe substituiert sein können,

15 in wäßriger Aufschlämmung, die im wesentlichen frei von organischen Lösungsmitteln ist, im wesentlichen in Abwesenheit von Scherkräften auf eine Temperatur von etwa 110°C bis etwa 175°C, gegebenenfalls in Anwesenheit einer oberflächenaktiven Verbindung, erwärmt und man danach das Pigment isoliert.

- 20 2. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man Rohpigmente der Formel



HC 39

0038548

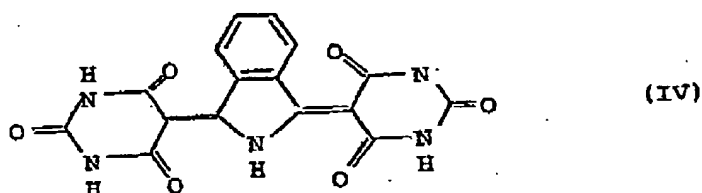
- 12 -

in der

R für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl, Phenyl, Brom, Chlor, (C₁-C₄-Alkyl)-carbonylamino, Benzoylamino, Phenoxy oder C₁-C₄-Alkoxy stehen, und

5 n 0, 1 oder 2 ist und
R₁ Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl oder Phenyl bezeichnet, einsetzt.

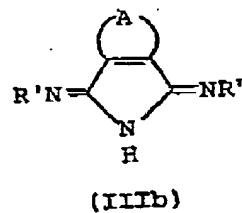
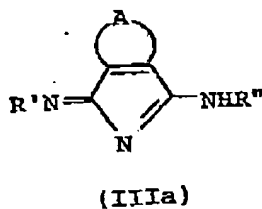
3. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man als Rohpigment



10 einsetzt.

4. Verfahren gemäß den Ansprüchen 1-3, dadurch gekennzeichnet, daß man solche Rohpigmente der Formel (I) gemäß Anspruch 1 einsetzt, die durch Kondensation einer Verbindung der Formeln

15



HC 39

0038548

- 13 -

in denen

A die in Formel (I) angegebene Bedeutung hat und
R', R'' Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl oder Phenyl bezeichnen,

5 mit Barbitursäure oder einem Barbitursäurederivat in
Wasser in Gegenwart einer Carbon-, Sulfon- oder
Mineralsäure bei einem pH-Wert von etwa 1-6 und bei
20°C - 150°C erhalten worden sind.

10 5. Verfahren gemäß den Ansprüchen 1-4, dadurch gekennzeichnet,
daß das eingesetzte Rohpigment eine
mittlere Teilchengröße der Primärpartikel unter 0,8
µm aufweist.

15 6. Verfahren gemäß den Ansprüchen 1-5, dadurch gekennzeichnet,
daß die Konditionierungszeit etwa 1-16 h
beträgt.

7. Verfahren gemäß den Ansprüchen 1-6, dadurch gekennzeichnet,
daß man auf etwa 120-150°C erwärmt.

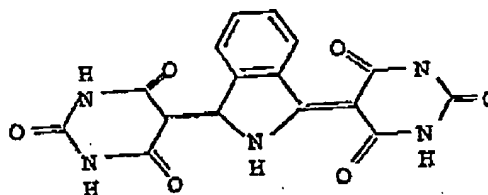
20 8. Verfahren gemäß den Ansprüchen 1-7, dadurch gekennzeichnet,
daß die wäßrige Aufschlämmung pro Gewichtsteil Pigment etwa 10-30 Gewichtsteile Wasser
enthält.

HC 39

0038548

- 14 -

9. Konditionierung von



(IV)

5

gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man pro Gewichtsteil Pigment etwa 10-30 Gewichtsteile Wasser in der wäßrigen Aufschlämmung einsetzt und man bei etwa 120-150°C gegebenenfalls unter Rühren konditioniert.

HC 39



Veröffentlichungsnummer: **0 038 548 A3**

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

Anmeldenummer: 81102981.8

Int. Cl.³: **C 09 B 57/04**
C 09 B 67/10

Anmeldetag: 17.04.81

Priorität: 21.04.80 US 141838
25.04.80 US 143571

Veröffentlichungstag der Anmeldung:
28.10.81 Patentblatt 81/43

Veröffentlichungstag des später
veröffentlichten Recherchenberichts: 06.10.82

Benannte Vertragsstaaten:
CH DE FR GB LI

Anmelder: Mobay Chemical Corporation
Penn Lincoln Parkway West
Pittsburgh, Pennsylvania 15205(US)

Erfinder: Lerner, Lawrence Robert
176 Grove Terrace
Livingston New Jersey 07039(US)

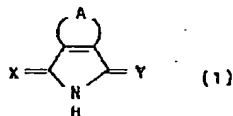
Erfinder: Shannon, Charles Ehlers
88 Elbert Court
Ramsey New Jersey 07446(US)

Erfinder: Santimauro, Francis
731 Birchwood Drive
Wyckoff New Jersey 07481(US)

Vertreter: Gremm, Joachim, Dr. et al,
Bayer AG c/o Zentralbereich Patente, Marken und
Lizenzen
D-5090 Leverkusen 1, Bayerwerk(DE)

Verfahren zur Konditionierung von organischen Pigmenten.

Verfahren zur Konditionierung organischer Pigmente,
dadurch gekennzeichnet, daß man ein Rohpigment der
Formel



EP 0 038 548 A3

in der
X, Y

Reste einer Barbitursäure oder eines Barbitursäure-
derivats und
die restlichen Glieder eines Benzol-, 1,2-
Naphthalin-, 2,3-Naphthelin-, Dithian-, Pyridin-
oder Pyrazin-Ringes bezeichnen, wobei die ge-
nannten Ringe substituiert sein können.

In wäßriger Aufschlämmung, die im wesentlichen frei von
organischen Lösungsmitteln ist, im wesentlichen in Abwe-
senheit von Scherkräften auf eine Temperatur von etwa
110°C bis etwa 175°C, gegebenenfalls in Anwesenheit einer
oberflächenaktiven Verbindung, erwärmt und man danach
das Pigment isoliert.

Gordon Printing Company Ltd



Europäisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

0038548

Nummer der Anmeldung

EP 81 10 2981

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl. 7)
Y	FR-A-2 355 886 (BASF) * Beispiele 1,4,5 * & US - A - 4 166 179 (Cat. D) & DE - A - 2 628 409	1	C 09 B 57/04 C 09 B 67/10
Y	FR-A-2 414 066 (BASF) * Seite 2, Zeilen 3-12 * & DE - A - 2 800 815	1	
Y	FR-A-2 107 064 (BASF) * Seite 1, Zeilen 1-24 * & DE - A - 2 041 999 (Cat. D)	1	
A	DE-B-1 012 406 (BASF)		
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.			RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. Cl. 7)
			C 09 B
Recherchenamt DEN Haag		Abschlußdatum der Recherche 09-07-1982	Gründer DAUKSCE H.J.
<p>KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTEN</p> <p>X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet</p> <p>Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie</p> <p>A : technologischer Hintergrund</p> <p>O : nichtschriftliche Offenbarung</p> <p>P : Zwischenliteratur</p> <p>T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze</p> <p>E : älteres Patentedokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist</p> <p>D : in der Anmeldung angeführtes Dokument</p> <p>L : aus andern Gründen angeführtes Dokument</p> <p>& : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</p>			

EPA Form 1503 03/82

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☐ BLACK BORDERS

☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES

☐ FADED TEXT OR DRAWING

☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING

☐ SKEWED/SLANTED IMAGES

☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS

☐ GRAY SCALE DOCUMENTS

☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT

☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.